

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number :

**2001-097777**(43)Date of publication of  
application :**10.04.2001**

(51)Int.Cl.

C04B 35/565

B01D 39/14

B01D 39/20

C04B 38/00

F01N 3/02

(21)Application  
number :**11-277121**(71)  
Applicant :**IBIDEN CO LTD**

(22)Date of filing :

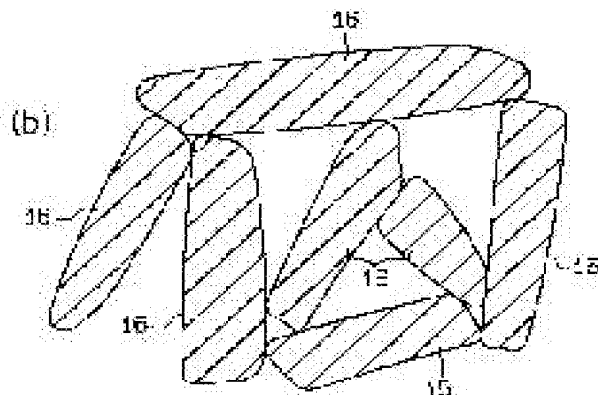
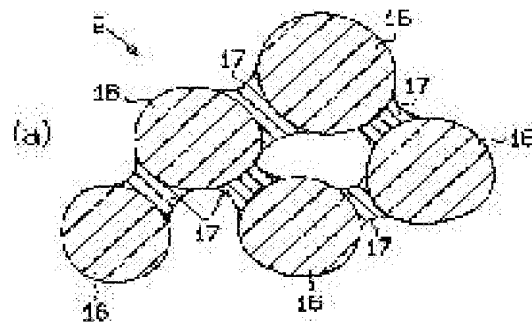
**29.09.1999**(72)  
Inventor :**ONO KAZUSHIGE  
TSUJI MASAHIRO**

## (54) **POROUS SILICON CARBIDE SINTERED PRODUCT, HONEYCOMB FILTER, CERAMIC FILTER ASSEMBLY**

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a honeycomb filter which has a high filtration capacity and an excellent strength.

SOLUTION: This honeycomb filter 9 comprises a columnar sintered product in which silicon carbide crystal grains 16 constituting porous tissues are bound with through neck portions 17. Crystal grains 16 having grain diameters of 5 to 20  $\mu\text{m}$  are contained in an amount of  $\geq 30\%$  in the sintered product. 20 to 150 Neck portions 17 of the crystal grains 16 are contained in a 0.1 mm square area.



\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]While a crystal grain child whose silicon carbide crystal grain children which constitute porous structure are the sintered compacts combined by neck part and whose particle diameter is 5 micrometers - 20 micrometers is contained not less than 30% in a sintered compact, A porous silicon carbide sintered compact, wherein said crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around.

[Claim 2]The porous silicon carbide sintered compact according to claim 1, wherein thermal conductivity of said sintered compact is 20 W/mK - 75 W/mK.

[Claim 3]While a crystal grain child whose silicon carbide crystal grain children which constitute porous structure are the pillar-shaped honeycomb filters which consist of a sintered compact combined by neck part and whose particle diameter is 5 micrometers - 20 micrometers is contained not less than 30% in a sintered compact, A honeycomb filter, wherein said crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around.

[Claim 4]When the silicon carbide crystal grain children which constitute porous structure paste up those peripheral faces via a nature sealant layer of ceramics, using two or more prismatic honeycomb filters which consist of a sintered compact combined by neck part as members forming, A ceramic filter aggregate characterized by said crystal grain child's neck part existing 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around while a crystal grain child whose particle diameter it is an aggregate which unifies said each honeycomb filter, and is 5 micrometers - 20 micrometers is contained not less than 30% in a sintered compact.

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the ceramic filter aggregate of the structure which pasted up two or more filters which consist of ceramic sintered bodies, and was unified and a

honeycomb filter usable to manufacture of that, and a porous silicon carbide sintered compact.  
[0002]

[Description of the Prior Art]The number of a car enters by the end of this century, and is increasing by leaps and bounds, and the increase of it also with a rapid quantity of the exhaust gas taken out from the internal-combustion engine of a car in proportion to it is being enhanced. Since various substances contained in the exhaust gas which especially a diesel power plant takes out become a cause which causes contamination, they are having influence serious for world environment now. The research result that the particles (diesel particulate) in exhaust gas become a cause which sometimes causes reduction of an allergy obstacle or a sperm count is also reported by these days. That is, it is considered to be an urgent technical problem for human beings to take the measure which removes the particles in exhaust gas.

[0003]The exhaust gas purifying facility of various varieties is proposed from before under such circumstances. A common exhaust gas purifying facility provides a casing in the way of the exhaust pipe connected with the engine exhaust manifold, and has the structure which has arranged the filter which has a detailed hole in it. There are ceramics besides metal or an alloy as a formation material of a filter. As an example of representation of the filter which consists of ceramics, the honeycomb filter of the product made from porosity cordierite or the product made from porous silicon carbide is known.

[0004]The honeycomb filter has a cell of a large number prolonged along an own axial direction. When exhaust gas passes through a filter, the trap of the particles is carried out with the cell wall. As a result, particles are removed out of exhaust gas. A filter is reproduced by heating and burning the particles by which the trap was carried out.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]However, since the honeycomb filter using porosity cordierite had low thermal conductivity, it was easy to produce a temperature gradient in the sintered compact, and the portion which became low temperature relatively had the fault of being easy to produce the cinder of particles. It was thought that the cause had the keen shape of a crystal grain child's connecting part, and crystal grain children's touch area was in an extremely small thing in the cordierite which consists of plate crystals.

[0006]In the case of the honeycomb filter using porous silicon carbide, in addition to the fault of generating of a cinder, there was also a problem of generating of the crack by heat stress. This invention is made in light of the above-mentioned problems, and although the purpose is porosity, there is in providing the porous silicon carbide sintered compact of high heat conductivity.

[0007]Another purpose of this invention has filtering capacity in providing the honeycomb filter which was expensive and was moreover excellent in intensity, and a ceramic filter aggregate.

[0008]

[Means for Solving the Problem]In order to solve the above-mentioned technical problem, in the invention according to claim 1. While a crystal grain child whose silicon carbide crystal grain children which constitute porous structure are the sintered compacts combined by neck part and whose particle diameter is 5 micrometers - 20 micrometers is contained not less than 30% in a sintered compact, Let a porous silicon carbide sintered compact, wherein said crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around be the gist.

[0009]In claim 1, thermal conductivity of said sintered compact presupposed that they are the invention according to claim 2 20 W/mK - 75 W/mK. The silicon carbide crystal grain children which constitute porous structure from an invention according to claim 3 are the pillar-shaped honeycomb filters which consist of a sintered compact combined by neck part, While a crystal grain child whose particle diameter is 5 micrometers - 20 micrometers is contained not less than 30% in a sintered compact, let a honeycomb filter, wherein said crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around be the gist.

[0010]The silicon carbide crystal grain children which constitute porous structure from an invention according to claim 4 use two or more prismatic honeycomb filters which consist of a sintered compact combined by neck part as members forming, While a crystal grain child whose particle diameter it is an aggregate which unifies said each honeycomb filter by pasting up those peripheral faces via a nature sealant layer of ceramics, and is 5 micrometers - 20 micrometers is contained not less than 30% in a sintered compact, Let a ceramic filter aggregate, wherein said crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around be the gist.

[0011]Hereafter, "OPERATION" of this invention is explained. According to the invention given in claims 1 and 2, since a crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around, thermal conductivity can be made high, avoiding decline in porosity by eburnation of an organization. A crystal grain child's ratio combined by having a big touch area as the number of a neck part is less than 20 pieces/0.1mm<sup>2</sup> will decrease, and thermal conductivity will become small. On the contrary, if a presence number of a neck part exceeds 150 pieces/0.1mm<sup>2</sup>, while thermal conductivity will become high, decline in porosity by eburnation of an organization progressing is no longer avoided.

[0012]In this case, as for thermal conductivity of a sintered compact, it is good that they are 20 W/mK - 75 W/mK. If thermal conductivity is too small, it becomes easy to produce a temperature gradient inside a sintered compact, and will lead to generating of big heat stress used as a cause of bringing about a crack. On the contrary, if it is going to make thermal conductivity high, manufacture will become difficult and stable material supplying will become difficult.

[0013]According to the invention given in claims 3 and 4, since a crystal grain child's neck part exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around, decline in porosity by eburnation of an organization can be avoided, and high filtering capacity is given. Since thermal conductivity can be made high, it becomes difficult to generate a cinder and generating of a crack by heat stress is also prevented.

[0014]

[Embodiment of the Invention]Hereafter, the exhaust gas purifying facility 1 for the diesel power plants of one embodiment which materialized this invention is explained in detail based on drawing 1 - drawing 6.

[0015]As shown in drawing 1, this exhaust gas purifying facility 1 is a device for purifying the exhaust gas discharged from the diesel power plant 2 as an internal-combustion engine. The diesel power plant 2 is provided with two or more cylinders which are not illustrated. The tee 4 of the exhaust manifold 3 which consists of metallic materials is connected with each cylinder, respectively. Each tee 4 is connected to the one manifold body 5, respectively. Therefore, the exhaust gas discharged from each cylinder is concentrated on one place.

[0016]The 1st exhaust pipe 6 and the 2nd exhaust pipe 7 which consist of metallic materials are allocated in the downstream of the exhaust manifold 3. The upstream end of the 1st exhaust pipe 6 is connected with the manifold body 5. Between the 1st exhaust pipe 6 and the 2nd exhaust pipe 7, the tubed casing 8 which similarly consists of metallic materials is allocated. The upstream end of the casing 8 is connected with the downstream end of the 1st exhaust pipe 6, and the downstream end of the casing 8 is connected with the upstream end of the 2nd exhaust pipe 7. It can also be grasped that the casing 8 is allocated in the way of the exhaust pipes 6 and 7. And as a result, the interior area of the 1st exhaust pipe 6, the casing 8, and the 2nd exhaust pipe 7 is mutually open for free passage, and exhaust gas flows in it.

[0017]As shown in drawing 1, the casing 8 is formed so that the center section may serve as a major diameter rather than the exhaust pipes 6 and 7. Therefore, the interior area of the casing 8 is large compared with the interior area of the exhaust pipes 6 and 7. The honeycomb filter 9 is accommodated in this casing 8.

[0018]The thermal insulation 10 is allocated between the peripheral face of the honeycomb filter 9, and the inner skin of the casing 8. The thermal insulation 10 is the mat state thing formed including ceramic fiber, and the thickness is several millimeters - tens of mm. The thermal insulation 10 is good to have thermal expansion nature. Since thermal expansion nature here has elastic structure, it refers to that there is a function to release heat stress. The reason is for stopping the energy loss at the time of reproduction to the minimum by preventing heat from escaping from the outermost periphery part of the honeycomb filter 9. It is for preventing a position gap of the ceramic filter aggregate 9 which the pressure of exhaust gas, vibration by run, etc. bring about by expanding ceramic fiber with the heat at the time of reproduction.

[0019]Since the honeycomb filter 9 used in this embodiment is what removes a diesel particulate like the above, generally it is called a diesel particulate filter (DPF). As shown in drawing 2 etc., the honeycomb filter 9 of this embodiment is cylindrical.

[0020]The honeycomb filter 9 is a product made from a porous silicon carbide sintered compact which is a kind of a ceramic sintered body. The reason for having adopted the silicon carbide sintered compact is that there is an advantage of especially excelling in intensity, heat resistance, and thermal conductivity, as compared with other ceramics.

[0021]As shown in drawing 2, drawing 3, and drawing 4, the honeycomb filter 9 of this embodiment is provided with what is called honeycomb structure. The reason for having adopted honeycomb structure is that there is an advantage that pressure loss is small even when the collection volume of particles increases. Two or more breakthroughs 12 which make the shape of a section abbreviation square are regularly formed in the honeycomb filter 9 along the axial direction. Each breakthrough 12 is mutually divided with the thin cell wall 13. The oxidation catalyst which consists of platinum group metals (for example, Pt etc.), other metallic elements, the oxide of those, etc. is supported by the outside surface of the cell wall 13. The opening of each breakthrough 12 is closed by the sealed body 14 (here porous silicon carbide sintered compact) at the one of end facea [ 9 ] and 9b side. Therefore, if it sees as the end face 9a and the whole 9b, the shape of a checker is presented. As a result, the cell of a large number which carried out section quadrangular shape is formed in the honeycomb filter 9. The density of a cell is set up before and after 200 pieces/inch, the thickness of the cell wall 13 is set as around 0.3 mm, and the cell pitch is set as around 1.8 mm. In the upstream end face 9a, the opening more than of the thing of about half one is carried out among a large number cells, and the opening of the remaining things is carried out in the downstream end side 9b.

[0022]As for the average pore diameter of the honeycomb filter 9, it is preferred that they are 1 micrometer - 50 micrometers, and 5 more micrometers - 20 micrometers. Blinding of the honeycomb filter 9 according that an average pore diameter is less than 1 micrometer to deposition of particles becomes remarkable. On the other hand, since it becomes impossible to catch fine particles when an average pore diameter exceeds 50 micrometers, collection efficiency will fall.

[0023]As for the porosity of the honeycomb filter 9, it is preferred that they are 30% - 70%, and 40 more% - 60%. The honeycomb filter 9 becomes it precise that porosity is less than 30% too much, and there is a possibility that it may become impossible to circulate exhaust gas inside. On the other hand, when porosity exceeds 70%, there is a possibility that may become weak in intensity and the collection efficiency of particles may fall into the honeycomb filter 9 since an opening increases too much.

[0024]When a porous silicon carbide sintered compact is chosen, as for the thermal conductivity of the honeycomb filter 9, it is good that they are 20 W/mK - 75 W/mK, and also it is good that they are especially 30 W/mK - 70 W/mK. If thermal conductivity is too small, it becomes easy to produce a temperature gradient in the honeycomb filter 9, and will lead to generating of the big heat stress used as the cause of bringing about a crack. On the contrary, if it is going to make

thermal conductivity high, manufacture will become difficult and stable material supplying will become difficult.

[0025]As roughly shown by drawing 5 (a), in the honeycomb filter 9 of this embodiment, silicon carbide crystal grain child 16 comrades which constitute porous structure are combined by what is called the neck part 17. In the neck part 17, the structure produced in a grain boundary by solid phase sintering of silicon carbide is pointed out here. In the honeycomb filter 9 of this embodiment, the outside surface of the neck part 17 is the shape of a smooth curve. The SEM photograph of a sintered compact is put on drawing 6 as reference.

[0026]As for the curvature radius of the outside surface of the neck part 17, it is good that it is not less than 3 micrometers, and it is especially good that they are [ 3 more micrometers - 100 micrometers ] 5 micrometers - 20 micrometers. It is because the touch area of crystal grain child 16 comrades does not become large but it becomes impossible to fully improve the bond strength which it is between the crystal grain children 16, when a curvature radius is smaller than 3 micrometers. It is because it becomes impossible giving the flexural strength of 45 or more MPa to the honeycomb filter 9, speaking concretely. When a curvature radius is set to not less than 100 micrometers, the honeycomb filter 9 becomes precise too much, and it becomes impossible on the contrary, to circulate exhaust gas inside. Therefore, filtering capacity will decline.

[0027]The crystal grain child's 16 neck part 17 needs to exist 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around in the arbitrary part in a sintered compact. As for the number of the neck part 17 per unit area, it is preferred that they are 30 piece/0.1mm<sup>2</sup>-120 piece/0.1mm<sup>2</sup>, and it is more preferred that they are 50 piece/0.1mm<sup>2</sup>-100 piece/0.1mm<sup>2</sup>.

[0028]The crystal grain child's 16 ratio combined by having a big touch area as the number of the neck part 17 is less than 20 pieces/0.1mm<sup>2</sup> will decrease, and thermal conductivity will become smaller than 20 W/mK. It becomes impossible therefore, to prevent certainly generating of the cinder in the honeycomb filter 9, and generating of the crack by heat stress. On the contrary, if the presence number of the neck part 17 exceeds 150 pieces/0.1mm<sup>2</sup>, while high thermal conductivity called 75 W/mK is realizable, decline in the porosity by eburnation of an organization progressing is no longer avoided. Therefore, into the honeycomb filter 9, it becomes impossible to circulate exhaust gas and filtering capacity will decline.

[0029]As for the abundance of that whose particle diameter is 5 micrometers - 30 micrometers among the crystal grain children 16, it is good that it is not less than 30%, and it is especially good that they are 35% - 80%. This is because it works in favor of improvement in thermal conductivity. As for the silicon carbide crystal grain child's 16 mean particle diameter in a sintered compact, it is good that they are 5 micrometers - about 15 micrometers.

[0030]Next, the procedure of manufacturing the above-mentioned honeycomb filter 9 is explained. First, the paste for closure used by the ceramic stock slurry used by an extrusion molding step and an end face sealing process is produced beforehand.

[0031]As ceramic stock slurry, what blended an organic binder and water with silicon carbide powder the predetermined daily dose every, and kneaded them to it is used. As a paste for closure, what blended and kneaded an organic binder, lubricant, a plasticizer, and water to silicon carbide powder is used.

[0032]In this case, as for ceramic stock slurry, it is desirable to be produced using two sorts of silicon carbide powder in which mean particle diameter differs. Speaking more concretely, it being desirable to mix the large powder's and mean particle diameter's of around 15 micrometers, and for mean particle diameter to use around 1-micrometer fines'. This is because the number of the neck parts 17 per unit area increases certainly and the curvature radius of the neck part 17 also becomes large, as a result of neck sintering being promoted by existence of the fines of the specified quantity.

[0033]Next, said ceramic stock slurry is supplied to an extruding press machine, and it is

continuously extruded via a metallic mold. Then, the honeycomb Plastic solid by which extrusion molding was carried out is cut to equal length, and a cylindrical honeycomb Plastic solid cutting piece is obtained. The single-sided opening of each cell of a cutting piece is filled up with the paste for specified quantity [ every ] closure, and the both-ends side of each cutting piece is closed.

[0034]Then, the desired honeycomb filter 9 is completed by setting temperature, time, etc. as predetermined conditions, performing this calcination, and making a honeycomb Plastic solid cutting piece and the sealed body 14 sinter thoroughly.

[0035]In this embodiment, calcination temperature was set as 2100 \*\* - 2300 \*\*, and firing time is set up in 0.1 hour - 5 hours. The furnace atmosphere at the time of calcination is made into an inert atmosphere, and the pressure of the atmosphere at that time is made into ordinary pressure. As for calcination temperature, it is desirable to be set as said within the limits as much as possible at slight height. It is because neck sintering is promoted by such temperature setting and increase of the increase in the number of the neck parts 17 per unit area and the curvature radius of the neck part 17 can be aimed at by it.

[0036]Next, the particulate trap operation by the above-mentioned honeycomb filter 9 is explained briefly. Exhaust gas is supplied to the honeycomb filter 9 accommodated in the casing 8 from the upstream end face 9a side. The exhaust gas supplied through the 1st exhaust pipe 6 flows first in the cell which carries out an opening in the upstream end face 9a. Subsequently, this exhaust gas passes the cell wall 13, and results in the inside of the cell which adjoins it, i.e., the cell which carries out an opening in the downstream end side 9b. And exhaust gas flows out of the downstream end side 9b of the honeycomb filter 9 via the opening of the cell. However, the particles contained in exhaust gas will not be able to pass the cell wall 13, but a trap will be carried out there. As a result, the purified exhaust gas is discharged from the downstream end side 9b of the honeycomb filter 9. After the purified exhaust gas passes the 2nd exhaust pipe 7 further, it is eventually emitted into the atmosphere. It will light by operation of said catalyst and the particles by which the trap was carried out will burn, if the internal temperature of the honeycomb filter 9 reaches a predetermined temperature.

[0037]

[Working Example(s) and Comparative Example(s)](EXAMPLE) 6.5% of the weight, an organic binder (methyl cellulose) and water were added 20% of the weight respectively to the mixture obtained by carrying out the wet blending of 51.5 % of the weight of alpha type silicon carbide powder with a mean particle diameter of 10 micrometers, and 22 % of the weight of the alpha type silicon carbide powder with a mean particle diameter of 0.5 micrometer, and were kneaded into it, respectively. Next, the generation form of honeycomb shape was acquired by carrying out extrusion molding of what added a small amount of plasticizers and lubricant to said kneaded material, and was kneaded further. Specifically, that (the Yaku Islands electrical engineering incorporated company make, trade name:C-1000F) whose mean particle diameter is 10 micrometers, and the thing (the Yaku Islands electrical engineering incorporated company make, trade name:GC-15) whose mean particle diameter is 0.5 micrometer were used as alpha type silicon carbide powder.

[0038]Next, after drying this generation form using a microwave drying machine, the breakthrough 12 of the Plastic solid was closed with the paste for closure made from a porous silicon carbide sintered compact. Subsequently, the paste for closure was again dried using the dryer. After degreasing this dried body at 400 \*\* following an end face sealing process, under the argon atmosphere of ordinary pressure, it was further calcinated at 2250 \*\* for about 3 hours. As a result, the honeycomb filter 9 made from a porous silicon carbide sintered compact was obtained. The diameter of each honeycomb filter 9 was set as 100 mm, and length was set as 200 mm.

[0039]Next, the organization of the honeycomb filter 9 produced by performing it above was observed by SEM. According to this investigation, having shape in which the neck part 17 is smooth and rounded was checked. When the curvature radius of the outside surface of the neck part 17 was measured based on the SEM photograph, the average value was about 10 micrometers. The crystal grain child 16 whose particle diameter is 5 micrometers - 20 micrometers was contained about about 60% in the sintered compact.

[0040]The area of 0.1 mm around was set as two or more parts which can be set in said SEM photograph, the number of the neck part 17 which exists in each area was counted, and those average value was calculated. As a result, in the example, the number of the neck part 17 per unit area was about 100 pieces/0.1mm<sup>2</sup>. That is, the crystal grain child's 16 ratio combined with a big touch area was high.

[0041]Then, when the thermal conductivity (W/mK) of said honeycomb filter 9 was conventionally measured by the publicly known method, the measured value was about 70 W/mK. Therefore, very high thermal conductivity was given to this honeycomb filter 9. The honeycomb filter 9 was accommodated in the casing 8, and fixed time use was carried out. As a result, a temperature gradient was not made easily in the honeycomb filter 9, and the crack was not generated at all in the honeycomb filter 9.

(Comparative example 1) In the comparative example 1, we decided to manufacture the honeycomb filter 9 using silicon carbide powder like the example fundamentally. The size of the honeycomb filter 9 was made equal to an example. However, mean particle diameter set up calcination temperature lowness for an around 15-micrometer thing a little here, using only one sort as alpha type silicon carbide powder.

[0042]When SEM observation was performed, it did not become shape so smooth [ the neck part 17 ] and rounded, but the average value of the curvature radius was about 1 micrometer. There was little number of the neck part 17 per unit area as about ten pieces/0.1mm<sup>2</sup>.

[0043]Therefore, the measured value of the thermal conductivity of the honeycomb filter 9 is about 15 W/mK, and was inferior to thermal conductivity compared with the example. As a result of accommodating the honeycomb filter 9 in the casing 8 and carrying out fixed time use, it originated in generating of heat stress and some crack was observed in the honeycomb filter 9. The cinder of particles was checked by the portion which was low as for temperature.

[0044](Comparative example 2) In the comparative example 2, we decided to manufacture the honeycomb filter of an example and the size using the porous sintered body of cordierite.

[0045]When SEM observation was performed, the neck part 17 like [ at the time of a porous silicon carbide sintered compact ] did not exist in the tabular crystal grain child's 16 connecting part. Therefore, the number of the neck part 17 per unit area was zero piece/0.1mm<sup>2</sup>. The shape of the crystal grain child's 16 connecting part was also hard to be referred to as being shape it being keen and smooth and rounded (refer to drawing 5 (b)).

[0046]Therefore, the measured value of the thermal conductivity of a honeycomb filter was extremely as low as about 3 W/mK, and extremely inferior to thermal conductivity compared with the example. The cinder of particles was checked by the portion which was low as for temperature, although the crack was not accepted as a result of accommodating a honeycomb filter in the casing 8 and carrying out fixed time use.

[0047]Therefore, according to the example of this embodiment, the following effects can be acquired.

(1) In the honeycomb filter 9 of an example, the crystal grain child's 16 neck part 17 exists 20 pieces - within the limits of [ 150 ] 0.1 mm around. Decline in the porosity by eburnation of an organization can be avoided, and high filtering capacity can be given to the honeycomb filter 9. Since thermal conductivity can be made high, it becomes difficult to generate a cinder partial in the honeycomb filter 9. And as a result of preventing generating of the crack by heat stress, the

honeycomb filter 9 becomes strong to destruction. And the exhaust gas purifying facility 1 using such a honeycomb filter 9 is high intensity, and over a long period of time, since it is usable, it becomes the thing excellent in practicality.

[0048](2) The thermal conductivity of the honeycomb filter 9 of an example is set up in an optimum range called 20 W/mK - 75 W/mK. Therefore, high-heat-conductivity-ization can be attained certainly, avoiding difficult-izing and high-cost-izing of manufacture.

[0049](3) In the honeycomb filter 9 of an example, since the neck part 17 is the shape of a smooth curve, the touch area of crystal grain child 16 comrades is large. For this reason, the bond strength between the crystal grain children 16 improves, and a fracture in a grain boundary does not take place easily. Therefore, even if it is porous structure, sufficient mechanical strength can be secured, and the honeycomb filter 9 which is hard to destroy can be obtained. Since the average value of the curvature radius of the neck part 17 is not less than 3 micrometers, sufficient flexural strength of 45 or more MPa can be given to the honeycomb filter 9.

[0050]The embodiment of this invention may be changed as follows.

- A thing like an embodiment limited cylindrical does not have the shape of the honeycomb filter 9, and it may be changed trianglepole shape, square pole form, in the shape of a hexagonal prism, etc.

[0051]- Like example of another shown in drawing 7, the one ceramic filter aggregate 21 may be manufactured combining the honeycomb filter [ two or more (here 16 pieces) ] 23. The prismatic honeycomb filter 23 which constitutes the aggregate 21 consists of a sintered compact in which silicon carbide crystal grain child 16 comrades which constitute porous structure were combined by the neck part 17. The peripheral face of the honeycomb filter 23 is mutually pasted up via the nature sealant layer 22 of ceramics. As a result, it is unified where each honeycomb filter 23 is bundled. If it has such composition, with the stress resulting from the temperature gradient by heating, a crack can be prevented from occurring and it will become strong also to a thermal shock about it. Therefore, enlargement of a filter can be attained comparatively easily.

[0052]- The number of combination of the honeycomb filter 23 may not be 16 pieces like the example of said exception, and can use arbitrary numbers. In this case, of course, it is also possible to use it, combining suitably the honeycomb filter 23 in which size differs from shape etc.

[0053]- Although the honeycomb filters 9 and 23 have honeycomb shape structure as shown in said embodiment or example of another, they may not be restricted for seeing, for example, they may be a three-dimensional network, form-like structure, noodle-like structure, fiber-like structure, etc.

[0054]- In the embodiment, it was realized as a filter for exhaust gas purifying facilities to which the honeycomb filter (or ceramic filter aggregate) of this invention is attached by the diesel power plant 2. Of course, the honeycomb filter (or ceramic filter aggregate) of this invention can be materialized as things other than the filter for exhaust gas purifying facilities. As the example, the member for heat exchangers, a high-temperature fluid, the barrier filter for high temperature steam, etc. are mentioned. The porous silicon carbide sintered compact of this invention is applicable also to uses other than a filter.

[0055]Next, the technical ideas grasped by the embodiment mentioned above are enumerated below besides the technical idea indicated to the claim.

(1) Be the shape of a curve with said smooth neck part in any one of the claims 1 thru/or 4.

[0056](2) In any one of claims 1 thru/or 4 and the technical ideas 1, the curvature radius of said neck part should be not less than 3 micrometers.

(3) In any one of claims 1 thru/or 4 and the technical ideas 1 and 2, the flexural strength of said sintered compact should be 45 or more MPa. Therefore, according to the invention given in this technical idea 3, a high mechanical strength is given.

[0057](4) While accommodating a honeycomb filter according to claim 3 or the ceramic filter

aggregate according to claim 4 in the casing provided in the way of the exhaust pipe of an internal-combustion engine, An exhaust gas purifying facility which filled up with thermal insulation the crevice which the peripheral face of said filter or said aggregate and the inner skin of said casing make. Therefore, according to the invention given in this technical idea 4, it is high intensity, and over a long period of time, since it is usable, the device excellent in practicality can be provided.

[0058]

[Effect of the Invention]As explained in full detail above, according to the invention given in claims 1 and 2, in spite of being porosity, the porous silicon carbide sintered compact of high heat conductivity can be provided.

[0059]According to the invention according to claim 3, the honeycomb filter whose filtering capacity was high and which was moreover excellent in intensity can be provided. According to the invention according to claim 4, the ceramic filter aggregate whose filtering capacity was high and which was moreover excellent in intensity can be provided.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

## DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]The whole exhaust gas purifying facility schematic diagram of one embodiment which materialized this invention.

[Drawing 2]The perspective view of the honeycomb filter of an embodiment.

[Drawing 3]The sectional view in the A-A line of the honeycomb filter of an embodiment.

[Drawing 4]The important section expanded sectional view of said exhaust gas purifying facility.

[Drawing 5]As for (a), (b) is an expansion outline sectional view of the sintered compact organization of the honeycomb filter of the example which consists of porous silicon carbide, and an expansion outline sectional view of the sintered compact organization of the comparative example 2 which consists of porosity cordierite.

[Drawing 6](a) and (b) are the SEM photographs of the honeycomb filter of an example.

[Drawing 7]The perspective view of the ceramic filter aggregate of example of another constituted using two or more honeycomb filters.

[Description of Notations]

9, 23 [ -- A ceramic filter aggregate, 22 / -- Nature sealant layer of ceramics. ] -- A honeycomb filter, 16 -- A crystal grain child, 17 -- A neck part, 21

---

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-97777

(P2001-97777A)

(43)公開日 平成13年4月10日(2001.4.10)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
C 0 4 B 35/565		B 0 1 D 39/14	B 3 G 0 9 0
B 0 1 D 39/14		39/20	D 4 D 0 1 9
39/20		C 0 4 B 38/00	3 0 3 Z 4 G 0 0 1
C 0 4 B 38/00	3 0 3	F 0 1 N 3/02	3 0 1 C 4 G 0 1 9
F 0 1 N 3/02	3 0 1		3 2 1 A
審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 10 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願平11-277121

(22)出願日 平成11年9月29日(1999.9.29)

(71)出願人 000000158

イビデン株式会社

岐阜県大垣市神田町2丁目1番地

(72)発明者 大野 一茂

岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1の1 イビデ  
ン 株式会社大垣北工場内

(72)発明者 辻 昌宏

岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1の1 イビデ  
ン 株式会社大垣北工場内

(74)代理人 100068755

弁理士 恩田 博宣 (外1名)

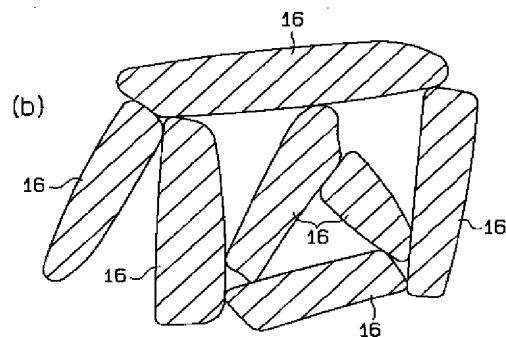
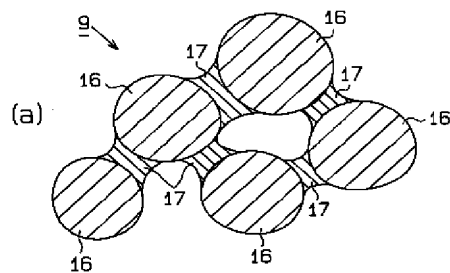
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 多孔質炭化珪素焼結体、ハニカムフィルタ、セラミックフィルタ集合体

(57)【要約】

【課題】 濾過能力が高くても強度に優れたハニカムフィルタを提供すること。

【解決手段】 このハニカムフィルタ9は柱状であって、多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子16同士がネック部17によって結合された焼結体からなる。粒径が5 $\mu$ m~20 $\mu$ mの結晶粒子16は、焼結体中に30%以上含まれる。結晶粒子16のネック部17は、0.1mm四方の範囲内に20個~150個存在している。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子同士がネック部によって結合された焼結体であって、粒径が  $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$  の結晶粒子が焼結体中に 30% 以上含まれるとともに、前記結晶粒子のネック部が  $0.1\text{mm}$  四方の範囲内に 20 個～150 個存在していることを特徴とする多孔質炭化珪素焼結体。

【請求項 2】前記焼結体の熱伝導率は  $20\text{W}/\text{mK}$ ～ $75\text{W}/\text{mK}$  であることを特徴とする請求項 1 に記載の多孔質炭化珪素焼結体。

【請求項 3】多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子同士がネック部によって結合された焼結体からなる柱状ハニカムフィルタであって、粒径が  $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$  の結晶粒子が焼結体中に 30% 以上含まれるとともに、前記結晶粒子のネック部が  $0.1\text{mm}$  四方の範囲内に 20 個～150 個存在していることを特徴とするハニカムフィルタ。

【請求項 4】多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子同士がネック部によって結合された焼結体からなる複数の角柱状ハニカムフィルタを構成部材として用い、それらの外周面同士をセラミック質シール材層を介して接着することにより、前記各ハニカムフィルタを一体化してなる集合体であって、粒径が  $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$  の結晶粒子が焼結体中に 30% 以上含まれるとともに、前記結晶粒子のネック部が  $0.1\text{mm}$  四方の範囲内に 20 個～150 個存在していることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、セラミック焼結体からなる複数のフィルタを接着して一体化した構造のセラミックフィルタ集合体、及びその製造に使用可能なハニカムフィルタ、多孔質炭化珪素焼結体に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】自動車の台数は今世紀に入って飛躍的に増加しており、それに比例して自動車の内燃機関から出される排気ガスの量も急激な増加の一途を辿っている。特にディーゼルエンジンの出す排気ガス中に含まれる種々の物質は、汚染を引き起こす原因となるため、現在では世界環境にとって深刻な影響を与えつつある。また、最近では排気ガス中の微粒子（ディーゼルパティキュレート）が、ときとしてアレルギー障害や精子数の減少を引き起こす原因となるとの研究結果も報告されている。つまり、排気ガス中の微粒子を除去する対策を講じることが、人類にとって急務の課題であると考えられている。

【0003】このような事情のもと、従来より、多様多種の排気ガス浄化装置が提案されている。一般的な排気ガス浄化装置は、エンジンの排気マニホールドに連結さ

れた排気管の途上にケーシングを設け、その中に微細な孔を有するフィルタを配置した構造を有している。フィルタの形成材料としては、金属や合金のほか、セラミックがある。セラミックからなるフィルタの代表例としては、多孔質コーディエライト製や多孔質炭化珪素製のハニカムフィルタが知られている。

【0004】ハニカムフィルタは自身の軸線方向に沿って延びる多数のセルを有している。排気ガスがフィルタを通り抜ける際、そのセル壁によって微粒子がトラップされる。その結果、排気ガス中から微粒子が除去される。また、トラップされた微粒子を加熱して燃やすことにより、フィルタが再生されるようになっている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】ところが、多孔質コーディエライトを用いたハニカムフィルタは、熱伝導率が低いため、焼結体内に温度差が生じやすく、相対的に低温となった部分に微粒子の燃え残りが生じやすいという欠点があった。また、その原因は、板状結晶からなるコーディエライトでは、結晶粒子の結合部分の形状が鋭角的であり、結晶粒子同士の接触面積が極端に小さいことにある、と考えられていた。

【0006】また、多孔質炭化珪素を用いたハニカムフィルタの場合には、燃え残りの発生という欠点に加え、熱応力によるクラックの発生という問題もあった。本発明は上記の課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、多孔質であるにもかかわらず高熱伝導率の多孔質炭化珪素焼結体を提供することにある。

【0007】また、本発明の別の目的は、濾過能力が高くても強度に優れたハニカムフィルタ、セラミックフィルタ集合体を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】上記の課題を解決するために、請求項 1 に記載の発明では、多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子同士がネック部によって結合された焼結体であって、粒径が  $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$  の結晶粒子が焼結体中に 30% 以上含まれるとともに、前記結晶粒子のネック部が  $0.1\text{mm}$  四方の範囲内に 20 個～150 個存在していることを特徴とする多孔質炭化珪素焼結体をその要旨とする。

【0009】請求項 2 に記載の発明は、請求項 1 において、前記焼結体の熱伝導率は  $20\text{W}/\text{mK}$ ～ $75\text{W}/\text{mK}$  であるとした。請求項 3 に記載の発明では、多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子同士がネック部によって結合された焼結体からなる柱状ハニカムフィルタであって、粒径が  $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$  の結晶粒子が焼結体中に 30% 以上含まれるとともに、前記結晶粒子のネック部が  $0.1\text{mm}$  四方の範囲内に 20 個～150 個存在していることを特徴とするハニカムフィルタをその要旨とする。

【0010】請求項 4 に記載の発明では、多孔質組織を

構成する炭化珪素結晶粒子同士がネック部によって結合された焼結体からなる複数の角柱状ハニカムフィルタを構成部材として用い、それらの外周面同士をセラミック質シール材層を介して接着することにより、前記各ハニカムフィルタを一体化してなる集合体であって、粒径が $5\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ の結晶粒子が焼結体中に30%以上含まれるとともに、前記結晶粒子のネック部が $0.1\text{mm}$ 四方の範囲内に20個 $\sim$ 150個存在していることを特徴とするセラミックフィルタ集合体をその要旨とする。

【0011】以下、本発明の「作用」について説明する。請求項1、2に記載の発明によると、結晶粒子のネック部が $0.1\text{mm}$ 四方の範囲内に20個 $\sim$ 150個存在していることから、組織の緻密化による気孔率の低下を回避しつつ熱伝導率を高くすることができる。ネック部の個数が20個/ $0.1\text{mm}^2$ 未満であると、大きな接触面積をもって結合される結晶粒子の比率が減り、熱伝導率が小さくなってしまう。逆に、ネック部の存在数が150個/ $0.1\text{mm}^2$ を超えると、熱伝導率が高くなる反面、組織の緻密化が進むことによる気孔率の低下が避けられなくなる。

【0012】この場合、焼結体の熱伝導率は $20\text{W}/\text{mK}\sim 75\text{W}/\text{mK}$ であることがよい。熱伝導率が小さすぎると、焼結体内部に温度差が生じやすくなり、クラックをもたらす原因となる大きな熱応力の発生につながってしまう。逆に、熱伝導率を高くしようとすると、製造が困難となり、安定的な材料供給が難しくなる。

【0013】請求項3、4に記載の発明によると、結晶粒子のネック部が $0.1\text{mm}$ 四方の範囲内に20個 $\sim$ 150個存在していることから、組織の緻密化による気孔率の低下を回避することができ、高い濾過能力が付与される。また、熱伝導率を高くすることができるため、燃え残りが発生しにくくなり、熱応力によるクラックの発生も防止される。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、本発明を具体化した一実施形態のディーゼルエンジン用の排気ガス浄化装置1を、図1～図6に基づき詳細に説明する。

【0015】図1に示されるように、この排気ガス浄化装置1は、内燃機関としてのディーゼルエンジン2から排出される排気ガスを浄化するための装置である。ディーゼルエンジン2は、図示しない複数の気筒を備えている。各気筒には、金属材料からなる排気マニホールド3の分岐部4がそれぞれ連結されている。各分岐部4は1本のマニホールド本体5にそれぞれ接続されている。従って、各気筒から排出された排気ガスは一箇所に集中する。

【0016】排気マニホールド3の下流側には、金属材料からなる第1排気管6及び第2排気管7が配設されている。第1排気管6の上流側端は、マニホールド本体5に連結されている。第1排気管6と第2排気管7との間

には、同じく金属材料からなる筒状のケーシング8が配設されている。ケーシング8の上流側端は第1排気管6の下流側端に連結され、ケーシング8の下流側端は第2排気管7の上流側端に連結されている。排気管6、7の途上にケーシング8が配設されていると把握することもできる。そして、この結果、第1排気管6、ケーシング8及び第2排気管7の内部領域が互いに連通し、その中を排気ガスが流れるようになっている。

【0017】図1に示されるように、ケーシング8はその中央部が排気管6、7よりも大径となるように形成されている。従って、ケーシング8の内部領域は、排気管6、7の内部領域に比べて広がっている。このケーシング8内には、ハニカムフィルタ9が収容されている。

【0018】ハニカムフィルタ9の外周面とケーシング8の内周面との間には、断熱材10が配設されている。断熱材10はセラミックファイバを含んで形成されたマット状物であり、その厚さは数mm $\sim$ 数十mmである。断熱材10は熱膨張性を有していることがよい。ここでいう熱膨張性とは、弾性構造を有するため熱応力を解放する機能があることを指す。その理由は、ハニカムフィルタ9の最外周部から熱が逃げること防止することにより、再生時のエネルギーロスを最小限に抑えるためである。また、再生時の熱によってセラミックファイバを膨張させることにより、排気ガスの圧力や走行による振動等のもたらすセラミックフィルタ集合体9の位置ずれを防止するためである。

【0019】本実施形態において用いられるハニカムフィルタ9は、上記のごとくディーゼルパティキュレート除去するものであるため、一般にディーゼルパティキュレートフィルタ(DPF)と呼ばれる。図2等々に示されるように、本実施形態のハニカムフィルタ9は円柱状である。

【0020】ハニカムフィルタ9は、セラミック焼結体の一種である多孔質炭化珪素焼結体製である。炭化珪素焼結体を採用した理由は、他のセラミックに比較して、とりわけ強度、耐熱性及び熱伝導性に優れるという利点があるからである。

【0021】図2、図3、図4に示されるように、本実施形態のハニカムフィルタ9は、いわゆるハニカム構造を備えている。ハニカム構造を採用した理由は、微粒子の捕集量が増加したときでも圧力損失が小さいという利点があるからである。ハニカムフィルタ9には、断面略正方形状をなす複数の貫通孔12がその軸線方向に沿って規則的に形成されている。各貫通孔12は薄いセル壁13によって互いに仕切られている。セル壁13の外表面には、白金族元素(例えばPt等)やその他の金属元素及びその酸化物等からなる酸化触媒が担持されている。各貫通孔12の開口部は、いずれか一方の端面9a、9bの側において封止体14(ここでは多孔質炭化珪素焼結体)により封止されている。従って、端面9

a, 9b 全体としてみると市松模様状を呈している。その結果、ハニカムフィルタ9には、断面四角形状をした多数のセルが形成されている。セルの密度は200個/インチ前後に設定され、セル壁13の厚さは0.3mm前後に設定され、セルピッチは1.8mm前後に設定されている。多数あるセルのうち、約半数のものは上流側端面9aにおいて開口し、残りのものは下流側端面9bにおいて開口している。

【0022】ハニカムフィルタ9の平均気孔径は1 $\mu$ m～50 $\mu$ m、さらには5 $\mu$ m～20 $\mu$ mであることが好ましい。平均気孔径が1 $\mu$ m未満であると、微粒子の堆積によるハニカムフィルタ9の目詰まりが著しくなる。一方、平均気孔径が50 $\mu$ mを越えると、細かい微粒子を捕集することができなくなるため、捕集効率が低下してしまう。

【0023】ハニカムフィルタ9の気孔率は30%～70%、さらには40%～60%であることが好ましい。気孔率が30%未満であると、ハニカムフィルタ9が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなるおそれがある。一方、気孔率が70%を越えると、ハニカムフィルタ9中に空隙が多くなりすぎてしまうため、強度的に弱くなりかつ微粒子の捕集効率が低下してしまうおそれがある。

【0024】多孔質炭化珪素焼結体を選択した場合においてハニカムフィルタ9の熱伝導率は、20W/mK～75W/mKであることがよく、さらには30W/mK～70W/mKであることが特によい。熱伝導率が小さすぎると、ハニカムフィルタ9内に温度差が生じやすくなり、クラックをもたらす原因となる大きな熱応力の発生につながってしまう。逆に、熱伝導率を高くしようとすると、製造が困難となり、安定的な材料供給が難しくなる。

【0025】図5(a)にて概略的に示されるように、本実施形態のハニカムフィルタ9では、多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子16同士が、いわゆるネック部17によって結合されている。ここでネック部17とは、炭化珪素の固相焼結によって粒界に生じる構造を指す。本実施形態のハニカムフィルタ9では、ネック部17の外表面が、なめらかな曲線状になっている。なお、参考として図6に焼結体のSEM写真を載せる。

【0026】ネック部17の外表面の曲率半径は3 $\mu$ m以上であることがよく、さらには3 $\mu$ m～100 $\mu$ m、特に5 $\mu$ m～20 $\mu$ mであることがよい。曲率半径が3 $\mu$ mよりも小さいと、結晶粒子16同士の接触面積が大きくならず、結晶粒子16間の結合強度を十分に向上できなくなるからである。具体的にいうと、45MPa以上の曲げ強度をハニカムフィルタ9に付与できなくなるからである。逆に、曲率半径が100 $\mu$ m以上になると、ハニカムフィルタ9が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなる。従っ

て、濾過能力が低下してしまう。

【0027】結晶粒子16のネック部17は、焼結体中の任意箇所における0.1mm四方の範囲内に、20個～150個存在していることが必要である。単位面積あたりのネック部17の個数は、30個/0.1mm<sup>2</sup>～120個/0.1mm<sup>2</sup>であることが好ましく、50個/0.1mm<sup>2</sup>～100個/0.1mm<sup>2</sup>であることがより好ましい。

【0028】ネック部17の個数が20個/0.1mm<sup>2</sup>未満であると、大きな接触面積をもって結合される結晶粒子16の比率が減り、熱伝導率が20W/mKよりも小さくなってしまう。従って、ハニカムフィルタ9内における燃え残りの発生や、熱応力によるクラックの発生を確実に防止することができなくなる。逆に、ネック部17の存在数が150個/0.1mm<sup>2</sup>を超えると、75W/mKという高い熱伝導率を実現することができる反面、組織の緻密化が進むことによる気孔率の低下が避けられなくなる。従って、ハニカムフィルタ9内に排気ガスを流通させることができなくなり、濾過能力が低下してしまう。

【0029】なお、結晶粒子16のうち粒径が5 $\mu$ m～30 $\mu$ mのものの存在率は30%以上であることがよく、特に35%～80%であることがよい。その理由は、熱伝導率の向上にとって有利に働くからである。また、焼結体における炭化珪素結晶粒子16の平均粒径は5 $\mu$ m～15 $\mu$ m程度であることがよい。

【0030】次に、上記のハニカムフィルタ9を製造する手順を説明する。まず、押出成形工程で使用するセラミック原料スラリー、端面封止工程で使用する封止用ペーストをあらかじめ作製しておく。

【0031】セラミック原料スラリーとしては、炭化珪素粉末に有機バインダ及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練したものをを用いる。封止用ペーストとしては、炭化珪素粉末に有機バインダ、潤滑剤、可塑剤及び水を配合し、かつ混練したものをを用いる。

【0032】この場合、セラミック原料スラリーは、平均粒径の異なる2種の炭化珪素粉末を用いて作製されることが望ましい。より具体的にいうと、平均粒径が15 $\mu$ m前後の大粉と平均粒径が1 $\mu$ m前後の微粉とを混合して用いることが望ましい。その理由は、所定量の微粉の存在によってネック焼結が促進される結果、単位面積あたりのネック部17の数が確実に増え、かつネック部17の曲率半径も大きくなるからである。

【0033】次に、前記セラミック原料スラリーを押出成形機に投入し、かつ金型を介してそれを連続的に押し出す。その後、押出成形されたハニカム成形体を等しい長さに切断し、円柱状のハニカム成形体切断片を得る。さらに、切断片の各セルの片側開口部に所定量ずつ封止用ペーストを充填し、各切断片の両端面を封止する。

【0034】続いて、温度・時間等を所定の条件に設定

して本焼成を行って、ハニカム成形体切断片及び封止体 14 を完全に焼結させることにより、所望のハニカムフィルタ 9 が完成する。

【0035】本実施形態では焼成温度を  $2100^{\circ}\text{C} \sim 2300^{\circ}\text{C}$  に設定し、かつ焼成時間を 0.1 時間～5 時間に設定している。また、焼成時の炉内雰囲気を不活性雰囲気とし、そのときの雰囲気の圧力を常圧としている。なお、焼成温度は前記範囲内において極力高めに設定されることが望ましい。このような温度設定によってネック焼結が促進され、単位面積あたりのネック部 17 の数の増加、及びネック部 17 の曲率半径の増大が図れるからである。

【0036】次に、上記のハニカムフィルタ 9 による微粒子トラップ作用について簡単に説明する。ケーシング 8 内に收容されたハニカムフィルタ 9 には、上流側端面 9a の側から排気ガスが供給される。第 1 排気管 6 を経て供給されてくる排気ガスは、まず、上流側端面 9a において開口するセル内に流入する。次いで、この排気ガスはセル壁 13 を通過し、それに隣接しているセル、即ち下流側端面 9b において開口するセルの内部に到る。そして、排気ガスは、同セルの開口を介してハニカムフィルタ 9 の下流側端面 9b から流出する。しかし、排気ガス中に含まれる微粒子はセル壁 13 を通過することができず、そこにトラップされてしまう。その結果、浄化された排気ガスがハニカムフィルタ 9 の下流側端面 9b から排出される。浄化された排気ガスは、さらに第 2 排気管 7 を通過した後、最終的には大気中へと放出される。また、トラップされた微粒子は、ハニカムフィルタ 9 の内部温度が所定の温度に達すると、前記触媒の作用により着火して燃焼するようになっている。

【0037】

【実施例及び比較例】（実施例）平均粒径  $10\mu\text{m}$  の  $\alpha$  型炭化珪素粉末 51.5 重量%と、平均粒径  $0.5\mu\text{m}$  の  $\alpha$  型炭化珪素粉末 22 重量%とを湿式混合し、得られた混合物に有機バインダ（メチルセルロース）と水とをそれぞれ 6.5 重量%、20 重量%ずつ加えて混練した。次に、前記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練したものを押出成形することにより、ハニカム状の生成形体を得た。具体的には、 $\alpha$  型炭化珪素粉末として、平均粒径が  $10\mu\text{m}$  のもの（屋久島電工株式会社製、商品名：C-1000F）と、平均粒径が  $0.5\mu\text{m}$  のもの（屋久島電工株式会社製、商品名：GC-15）とを用いた。

【0038】次に、この生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形体の貫通孔 12 を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に続いて、この乾燥体を  $400^{\circ}\text{C}$  で脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において  $2250^{\circ}\text{C}$  で約 3 時間焼成した。その結果、多孔質炭化珪

素焼結体製のハニカムフィルタ 9 を得た。各ハニカムフィルタ 9 の直径は  $100\text{mm}$  に設定し、長さは  $200\text{mm}$  に設定した。

【0039】次に、上記のようにして得られたハニカムフィルタ 9 の組織を SEM で観察した。この調査によると、ネック部 17 が、なめらかで曲線的な形状になっていることが確認された。また、SEM 写真に基づいてネック部 17 の外表面の曲率半径を測定したところ、その平均値は約  $10\mu\text{m}$  であった。粒径が  $5\mu\text{m} \sim 20\mu\text{m}$  の結晶粒子 16 は、焼結体中に約 60% ほど含まれていた。

【0040】また、前記 SEM 写真内における複数の箇所に  $0.1\text{mm}$  四方のエリアを設定し、各エリア内に存在するネック部 17 の個数をカウントし、それらの平均値を求めた。その結果、実施例では単位面積あたりのネック部 17 の個数は約  $100\text{個}/0.1\text{mm}^2$  であった。即ち、大きな接触面積をもって結合される結晶粒子 16 の比率が高かった。

【0041】そこで、前記ハニカムフィルタ 9 の熱伝導率 ( $\text{W}/\text{mK}$ ) を従来公知の方法により測定したところ、その測定値は約  $70\text{W}/\text{mK}$  であった。従って、このハニカムフィルタ 9 には極めて高い熱伝導性が付与されていた。また、ハニカムフィルタ 9 をケーシング 8 内に收容して一定期間使用をした。その結果、ハニカムフィルタ 9 内に温度差がでにくく、ハニカムフィルタ 9 に何らクラックは発生しなかった。

（比較例 1）比較例 1 では、基本的には実施例と同様に、炭化珪素粉末を用いてハニカムフィルタ 9 を製造することとした。ハニカムフィルタ 9 の寸法等は実施例と等しくした。ただし、ここでは  $\alpha$  型炭化珪素粉末として平均粒径が  $15\mu\text{m}$  前後のものを 1 種のみを用い、かつ焼成温度をやや低めに設定した。

【0042】SEM 観察を行ったところ、ネック部 17 は、それほどなめらかで曲線的な形状にはなっておらず、曲率半径の平均値は約  $1\mu\text{m}$  程度であった。単位面積あたりのネック部 17 の個数は、約  $10\text{個}/0.1\text{mm}^2$  と少なかった。

【0043】よって、ハニカムフィルタ 9 の熱伝導率の測定値は約  $15\text{W}/\text{mK}$  であり、実施例に比べて熱伝導性に劣っていた。ハニカムフィルタ 9 をケーシング 8 内に收容して一定期間使用をした結果、熱応力の発生に起因してハニカムフィルタ 9 に若干のクラックが認められた。また、温度の低かった部分に微粒子の燃え残りが確認された。

【0044】（比較例 2）比較例 2 では、コーディエライトの多孔質焼結体を用いて実施例と同寸法のハニカムフィルタを製造することとした。

【0045】SEM 観察を行ったところ、板状の結晶粒子 16 の結合部分には、多孔質炭化珪素焼結体のときのようなネック部 17 は存在していなかった。ゆえに、単

位面積あたりのネック部 17 の個数は 0 個/0.1 mm<sup>2</sup>であった。また、結晶粒子 16 の結合部分の形状も鋭角的であって、なめらかで曲線的な形状であるとはいえない(図 5 (b)参照)。

【0046】よって、ハニカムフィルタの熱伝導率の測定値は約 3 W/mK と極端に低く、実施例に比べて極めて熱伝導性に劣っていた。ハニカムフィルタをケーシング 8 内に収容して一定期間使用をした結果、クラックは認められなかったものの、温度の低かった部分に微粒子の燃え残りが確認された。

【0047】従って、本実施形態の実施例によれば以下のような効果を得ることができる。

(1) 実施例のハニカムフィルタ 9 においては、結晶粒子 16 のネック部 17 が 0.1 mm 四方の範囲内に 20 個～150 個存在している。組織の緻密化による気孔率の低下を回避することができ、ハニカムフィルタ 9 に高い濾過能力を付与することができる。また、熱伝導率を高くすることができるため、ハニカムフィルタ 9 内に部分的な燃え残りが発生しにくくなる。しかも、熱応力によるクラックの発生が防止される結果、ハニカムフィルタ 9 が破壊に強くなる。そして、このようなハニカムフィルタ 9 を用いた排気ガス浄化装置 1 は、高強度であって長期にわたり使用可能なため、実用性に優れたものとなる。

【0048】(2) 実施例のハニカムフィルタ 9 の熱伝導率は、20 W/mK～75 W/mK という好適範囲内に設定されている。従って、製造の困難化や高コスト化を回避しつつ、確実に高熱伝導化を図ることができる。

【0049】(3) 実施例のハニカムフィルタ 9 においては、ネック部 17 がなめらかな曲線状になっているため、結晶粒子 16 同士の接触面積が大きくなっている。このため、結晶粒子 16 間の結合強度が向上し、粒界での破断が起こりにくい。従って、多孔質組織であったとしても十分な機械的強度を確保することができ、破壊しにくいハニカムフィルタ 9 を得ることができる。なお、ネック部 17 の曲率半径の平均値が 3 μm 以上であるため、45 MPa 以上の十分な曲げ強度をハニカムフィルタ 9 に付与することができる。

【0050】なお、本発明の実施形態は以下のように変更してもよい。

・ ハニカムフィルタ 9 の形状は、実施形態のような円柱状に限定されることはなく、三角柱状、四角柱状、六角柱状等に変更しても構わない。

【0051】・ 図 7 に示される別例のように、複数個(ここでは 16 個)のハニカムフィルタ 23 を組み合わせて 1 つのセラミックフィルタ集合体 21 を製造してもよい。集合体 21 を構成する角柱状ハニカムフィルタ 23 は、多孔質組織を構成する炭化珪素結晶粒子 16 同士がネック部 17 によって結合された焼結体からなる。ハニカムフィルタ 23 の外周面は、互いにセラミック質シ

ール材層 22 を介して接着されている。その結果、各ハニカムフィルタ 23 が束ねられた状態で一体化されている。このような構成にすれば、加熱による温度勾配に起因する応力によってクラックが発生するのを防止でき、熱衝撃にも強くなる。従って、比較的容易にフィルタの大型化を達成することができる。

【0052】・ ハニカムフィルタ 23 の組み合わせ数は、前記別例のように 16 個でなくてもよく、任意の数にすることが可能である。この場合、サイズ・形状等の異なるハニカムフィルタ 23 を適宜組み合わせ使用することも勿論可能である。

【0053】・ ハニカムフィルタ 9、23 は前記実施形態や別例にて示したようなハニカム状構造を有するもののみに限られず、例えば三次元網目構造、フォーム状構造、ヌードル状構造、ファイバ状構造等であってもよい。

【0054】・ 実施形態においては、本発明のハニカムフィルタ(またはセラミックフィルタ集合体)を、ディーゼルエンジン 2 に取り付けられる排気ガス浄化装置用フィルタとして具体化していた。勿論、本発明のハニカムフィルタ(またはセラミックフィルタ集合体)は、排気ガス浄化装置用フィルタ以外のものとして具体化されることができる。その例としては、熱交換器用部材、高温流体や高温蒸気のための濾過フィルタ等が挙げられる。さらに、本発明の多孔質炭化珪素焼結体は、フィルタ以外の用途にも適用可能である。

【0055】次に、特許請求の範囲に記載された技術的思想のほかに、前述した実施形態によって把握される技術的思想を以下に列挙する。

(1) 請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 つにおいて、前記ネック部がなめらかな曲線状になっていること。

【0056】(2) 請求項 1 乃至 4、技術的思想 1 のいずれか 1 つにおいて、前記ネック部の曲率半径は 3 μm 以上であること。

(3) 請求項 1 乃至 4、技術的思想 1、2 のいずれか 1 つにおいて、前記焼結体の曲げ強度は 45 MPa 以上であること。従って、この技術的思想 3 に記載の発明によれば、高い機械的強度が付与される。

【0057】(4) 内燃機関の排気管の途上に設けられたケーシング内に、請求項 3 に記載のハニカムフィルタまたは請求項 4 に記載のセラミックフィルタ集合体を収容するとともに、前記フィルタまたは前記集合体の外周面と前記ケーシングの内周面とがなす隙間に、断熱材を充填した排気ガス浄化装置。従って、この技術的思想 4 に記載の発明によれば、高強度であって長期にわたり使用可能なため、実用性に優れた装置を提供することができる。

【0058】

【発明の効果】以上詳述したように、請求項 1、2 に記載の発明によれば、多孔質であるにもかかわらず高熱伝

11

導率の多孔質炭化珪素焼結体を提供することができる。

【0059】請求項3に記載の発明によれば、濾過能力が高くても強度に優れたハニカムフィルタを提供することができる。請求項4に記載の発明によれば、濾過能力が高くても強度に優れたセラミックフィルタ集合体を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

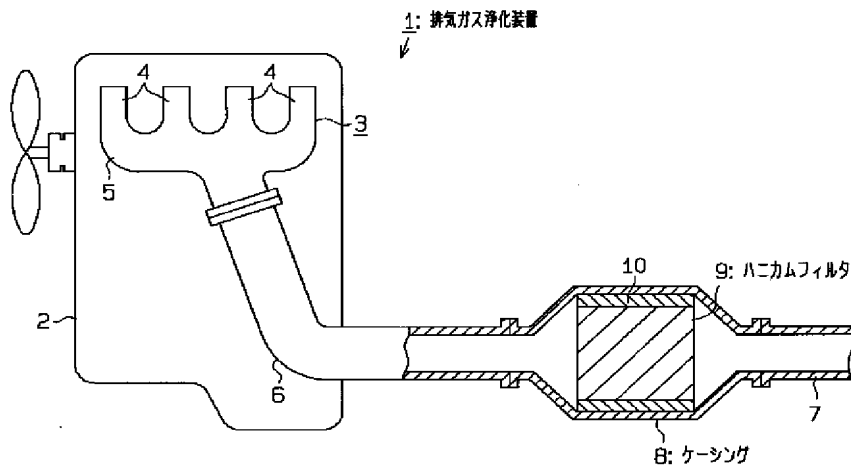
【図1】本発明を具体化した一実施形態の排気ガス浄化装置の全体概略図。

【図2】実施形態のハニカムフィルタの斜視図。

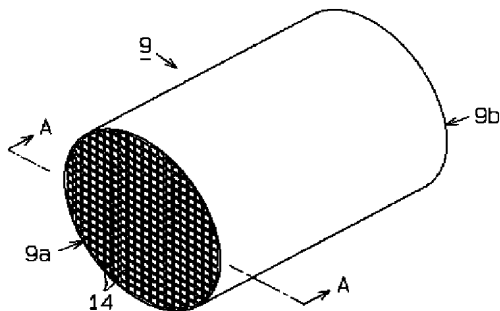
【図3】実施形態のハニカムフィルタのA-A線における断面図。

【図4】前記排気ガス浄化装置の要部拡大断面図。 \*

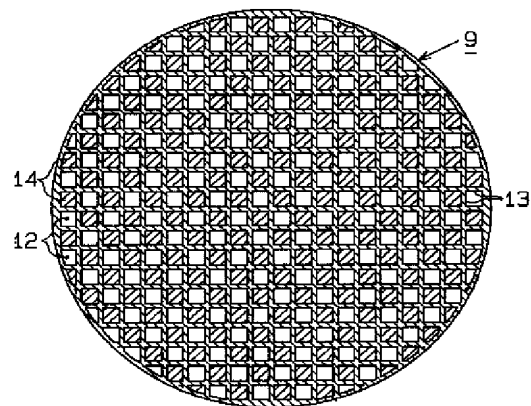
【図1】



【図2】



【図3】



12

\*【図5】(a)は多孔質炭化珪素からなる実施例のハニカムフィルタの焼結体組織の拡大略断面図、(b)は多孔質コーディエライトからなる比較例2の焼結体組織の拡大略断面図。

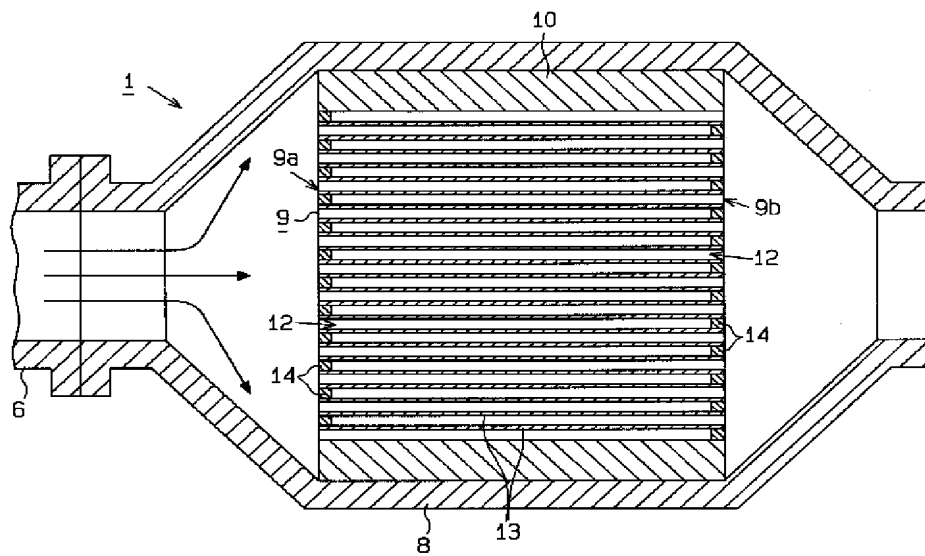
【図6】(a), (b)は実施例のハニカムフィルタのSEM写真。

【図7】複数のハニカムフィルタを用いて構成される別例のセラミックフィルタ集合体の斜視図。

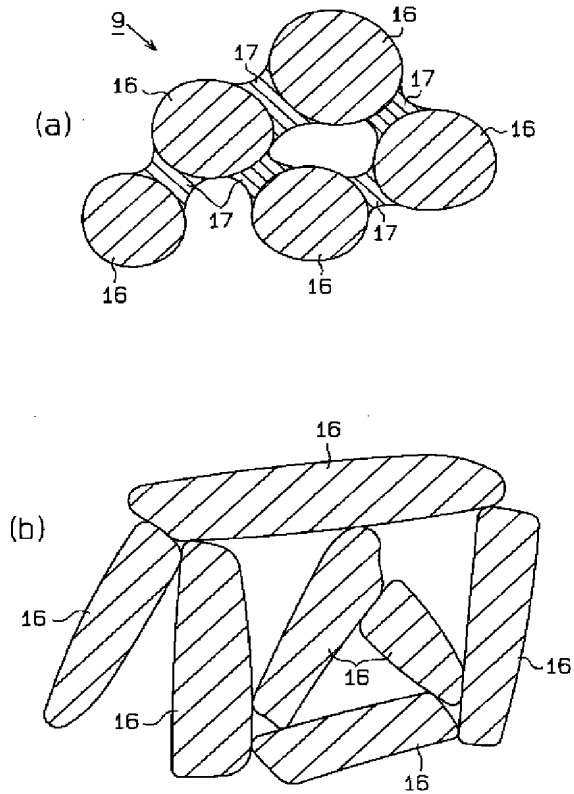
【符号の説明】

9, 23…ハニカムフィルタ、16…結晶粒子、17…ネック部、21…セラミックフィルタ集合体、22…セラミック質シール材層。

【図4】

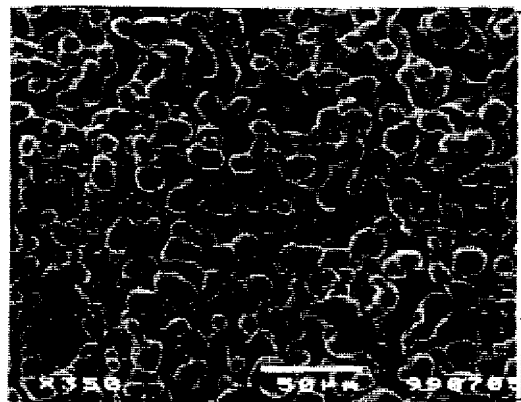


【図5】



【図6】

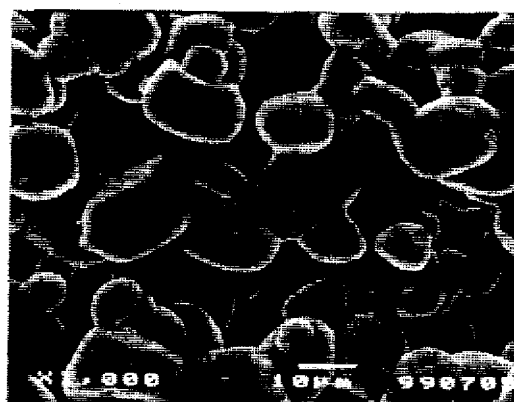
(a)



×350

YY  
(現行)屋久島  
屋久島

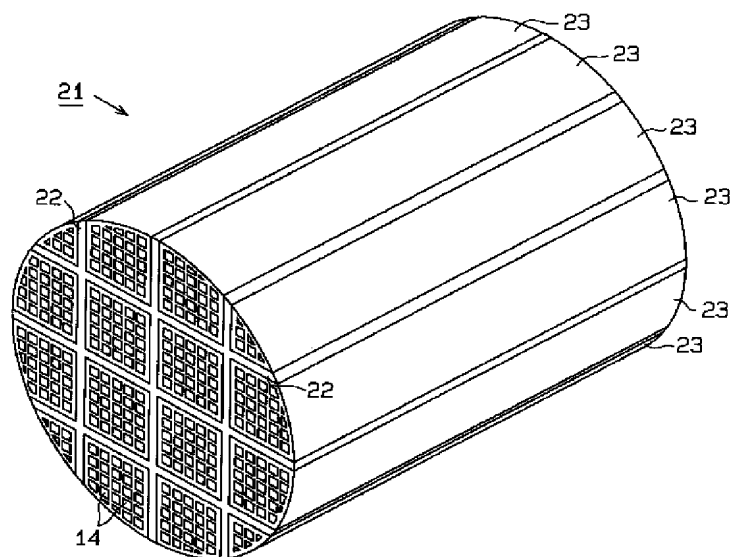
(b)



×1000

C-1000F  
GC-15

【図7】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>  
F 0 1 N 3/02識別記号  
3 2 1F I  
C 0 4 B 35/56テーマコード (参考)  
1 0 1 Z

F ターム(参考) 3G090 AA03  
4D019 AA01 BA05 BB06 BC07 BC12  
BC20 BD01 CA01 CB03 CB04  
CB06  
4G001 BA22 BB22 BC12 BC13 BC52  
BC54 BC56 BD03 BD14 BD15  
BD36 BE02 BE13 BE22 BE26  
BE33 BE39  
4G019 FA00 FA12